

BEST AVAILABLE

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平4-238866

(43) 公開日 平成4年(1992)8月26日

(51) Int.Cl. <sup>5</sup>	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
C 0 4 B 35/56	1 0 1 P	7310-4G		
	V	7310-4G		

審査請求 未請求 請求項の数1(全 3 頁)

(21) 出願番号	特願平3-13851	(71) 出願人	000002060 信越化学工業株式会社 東京都千代田区大手町2丁目6番1号
(22) 出願日	平成3年(1991)1月11日	(72) 発明者	小林 幸夫 福井県武生市北府2-1-5 信越化学工業株式会社磁性材料研究所内
		(72) 発明者	平沢 照彦 福井県武生市北府2-1-5 信越化学工業株式会社磁性材料研究所内
		(72) 発明者	河野 修 福井県武生市北府2-1-5 信越化学工業株式会社磁性材料研究所内
		(74) 代理人	弁理士 小島 隆司

(54) 【発明の名称】 炭化ケイ素焼結体チューブの製造方法

(57) 【要約】

【目的】 均一な組織を有する炭化ケイ素焼結体チューブを製造する。

【構成】 粒径5~20 $\mu$ mの微粒炭化ケイ素粉末と平均粒径50~100 $\mu$ mの粗粒炭化ケイ素粉末とを配合した配合物に平均粒径2~8 $\mu$ mの炭素粉末と結合剤を加えて混合造粒し、この混合造粒物をチューブ状に成形し、この成形体を非酸化性雰囲気中で温度500~1000℃で加熱して仮焼成体を作製し、この仮焼成体に熔融金属ケイ素を浸透させながら金属ケイ素の融点以上の温度で反応焼結させる。

【効果】 粗粒と微粒の炭化ケイ素粉末を粒度配合したものを原料粉末としたので、高密度で組織が均一化された成形体を得られ、従って、密度や強度が均一な炭化ケイ素焼結体チューブを得ることができる。

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 平均粒径5～20 $\mu$ mの微粒炭化ケイ素粉末と平均粒径50～100 $\mu$ mの粗粒炭化ケイ素粉末とを配合した配合物に平均粒径2～8 $\mu$ mの炭素粉末と結合剤を加えて混合造粒し、この混合造粒物をチューブ状に成形し、この成形体を非酸化性雰囲気中において温度500～1000℃で加熱して仮焼成体を作製し、この仮焼成体に熔融金属ケイ素を浸透させながら金属ケイ素の融点以上の温度で反応焼結させることを特徴とする炭化ケイ素焼結体チューブの製造方法。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【産業上の利用分野】 本発明は、反応焼結法による炭化ケイ素焼結体チューブの製造方法に関し、特に高密度でかつ均一な強度を有する炭化ケイ素焼結体チューブを製造する方法に関する。

## 【0002】

【従来の技術】 従来の反応焼結法による炭化ケイ素焼結体の製造方法は、まず、平均粒径5～20 $\mu$ mの微粒炭化ケイ素微粒粉末と微粒炭素粉末もしくは炭素源となる有機物質を混合し、これに結合剤を添加して造粒し、これを乾燥することによって得られた造粒粉末をラバープレスにより成形し、この成形体を加熱して仮焼成体を作製する。次いで、この仮焼成体にその全面から熔融金属ケイ素を浸透させて、金属ケイ素を炭素粉末もしくは炭素源を反応させて新たに炭化ケイ素を生成させることにより、炭化ケイ素焼結体を得るものである。この場合、その焼結過程で仮焼成体に含まれている原料として最初から存在する炭化ケイ素と新たに生成した炭化ケイ素が渾然一体となる。

## 【0003】

【発明が解決しようとする課題】 しかしながら、上記従来の製造方法においては、成形工程において成形体の密度が上らず、高い空隙率を生じ、従って、成形体組織の不均一が生じ、このため仮焼成工程において不均一な線膨脹を生むので、仮焼成体はより不均一な組織を有するものとなる。このため、この仮焼成体に熔融金属ケイ素を浸透させ、金属ケイ素と炭素とを反応させることにより得られた焼結体も不均一な組織となり、その結果、密度や強度のばらつきが大きくなるという問題点があり、特にチューブ状の成形体ではかかる問題が生じ易いものであった。そして、このような方法で得られたチューブ形状の焼結体を900～1300℃の高温のもとで使用する場合、前述のような強度のばらつきが存在すると、最も弱い箇所から亀裂、割れ等の破壊を生じるという問題点もあった。

【0004】 本発明は上記問題点を解決するためになされたもので、高密度で均一な組織を有し、このため強度が均一でかつ耐熱衝撃性が向上した炭化ケイ素焼結体チューブの製造方法を提供することを目的とする。

## 【0005】

【課題を解決するための手段及び作用】 本発明者は、上記目的を達成するため鋭意検討を行った結果、平均粒径5～20 $\mu$ mの微粒炭化ケイ素と平均粒径50～100 $\mu$ mの粗粒炭化ケイ素とを混合し、これに平均粒径2～8 $\mu$ mの炭素粉末を結合剤と共に混合し、チューブ状に成形した場合、得られた成形体の組織が均一化し、高密度化すること、この成形体を500～1000℃で仮焼することによって、均質で強度が均一な仮焼成体を得られること、従ってかかる均質な仮焼成体を熔融金属ケイ素を浸透させながら焼結することにより、緻密で均一かつ高い密度及び強度を有し、加熱冷却による線膨脹変化も均一で耐熱衝撃性も高く、それ故高温下で使用するような場合でも容易に亀裂、割れ等の破壊の生じることのない炭化ケイ素焼結体チューブが得られることを知見し、本発明をなすに至ったものである。

【0006】 以下、本発明を更に詳しく説明すると、本発明の炭化ケイ素の製造方法は、平均粒径5～20 $\mu$ mの微粒炭化ケイ素粉末と平均粒径50～100 $\mu$ mの粗粒炭化ケイ素粉末とを配合した配合物に平均粒径2～8 $\mu$ mの炭素粉末と結合剤を加えて混合造粒し、この混合造粒物をチューブ状に成形し、この成形体を非酸化性雰囲気中において温度500～1000℃で加熱して仮焼成体を作製し、この仮焼成体に熔融金属ケイ素を浸透させながら金属ケイ素の融点以上の温度で反応焼結させるものである。

【0007】 ここで微粒及び粗粒の炭化ケイ素の平均粒径は上記の通りであるが、特に、微粒の炭化ケイ素粉末の平均粒径は5～10 $\mu$ mとすることがより好ましく、粗粒の炭化ケイ素粉末の平均粒径は50～60 $\mu$ mとすることがより好ましい。また、微粒の炭化ケイ素粉末と粗粒の炭化ケイ素粉末の配合割合は重量比として1:1～10、特に1:1～3とすることが好ましい。

【0008】 一方、炭素粉末の平均粒径は2～8 $\mu$ mであるが、特に3～5 $\mu$ mとすることがより好ましい。なお、炭素粉末としては微粒の人造黒鉛等を使用することができる。炭素粉末の配合割合は炭化ケイ素粉末配合物100部（重量部、以下同じ）に対して5～50部、特に5～20部とすることが好ましい。

【0009】 結合剤としては、熱硬化性のフラン樹脂、フェノール樹脂やシリコン樹脂、エポキシ樹脂等を使用することができる。この結合剤の配合割合は炭化ケイ素粉末配合物100部に対して10～50部、特に15～35部とすることが好ましい。

【0010】 本発明に従って炭化ケイ素焼結体を製造するには、まず、上記炭化ケイ素粉末と炭素粉末配合物と結合剤とを混合し、造粒する。この場合、アセトン、メチルアルコール等の有機溶剤を用いて湿式混合することが好ましい。有機溶剤を混合した後は、公知の方法で造粒乾燥することができるが、この場合造粒物の平均粒径

(3)

特開平4-238866

3

は80~200 $\mu$ mとするのがよい。

【0011】この乾燥造粒物は、次いでチューブ状に成形するが、その成形方法としては、チューブ形状のゴム型に充填し、圧力1~2ton/cm<sup>2</sup>でラバープレスによりチューブ形状に成形する方法が好適に採用し得るが、勿論これに限定されるものではない。ここで、チューブの肉厚は仮焼成体としたときに3~15mm、特に5~7mmとなるようにすることが好ましい。

【0012】次に、前記成形体を温度500~1000℃、好ましくは600~800℃で加熱し、仮焼成体を作製する。この加熱により、成形体中の結合剤を分解揮散させると共に、仮焼成体を適度に硬化させることができる。仮焼成は、窒素ガス、アルゴンガス等の非酸化性ガス雰囲気中で行なうが、特に、窒素ガス雰囲気中で加熱することが好ましい。なお、仮焼成時の温度、雰囲気及び圧力等は結合剤の種類や配合によって適宜選択することができる。

【0013】その後、常法によって焼結炉で金属ケイ素の融点以上の温度で仮焼成体に熔融金属ケイ素を浸透させながら金属ケイ素と炭素とを反応焼結させることにより、炭化ケイ素焼結体チューブが得られる。この場合、焼結温度は1500~2000℃、特に1550~1800℃とすることが好ましい。

【0014】

【実施例】以下、実施例を示し、本発明を具体的に説明するが、本発明は下記の実施例に制限されるものではない。

【0015】【実施例】純度99.5%で平均粒径10 $\mu$ mの高純度炭化ケイ素粉末30部、純度99.8%で

4

平均粒径54 $\mu$ mの高純度炭化ケイ素粉末50部、平均粒径5 $\mu$ mの炭素粉末5部、結合剤として粉末フェノール樹脂15部、アセトン60部をボールミル中で10時間混合し、得られた混合物を平均粒径150 $\mu$ mに造粒し、乾燥させた。次に、この乾燥造粒物をチューブ状ゴム型に充填し、ラバープレスにより1ton/cm<sup>2</sup>の圧力を加えて成形し、外径210mm、内径200mm、長さ2000mmのチューブを得た。次いで、このチューブを窒素ガス雰囲気中で600℃に加熱し、フェノール樹脂を硬化させた。

【0016】次に、温度1600℃で熔融金属ケイ素を含浸させながら金属ケイ素と炭素とを反応させ、炭化ケイ素焼結体チューブを得た。得られたチューブの組織を光学顕微鏡で観察したところ、炭化ケイ素と金属ケイ素が均一に分布しており、しかも空隙がまったく認められなかった。

【0017】また、チューブの両端部と中央部の3か所から焼結体を切り出し、これらを幅4mm×高さ3mm×長さ40mmの形状に加工・研磨してテストピースとし、それぞれの箇所における曲げ強さ（3点曲げ法）を測定したところ、各々の平均値がすべて40kgf/m<sup>2</sup>であり、強度が均一なチューブが得られたことが確認された。

【0018】

【発明の効果】以上説明したように、本発明においては、粗粒と微粒の炭化ケイ素粉末を粒度配合したものを原料粉末としたので、高密度で組織が均一化された成形体を得られ、従って、密度や強度が均一な炭化ケイ素焼結体チューブを得ることができる。